

**PATENT ABSTRACTS OF JAPAN**(11)Publication number : **04-118857**(43)Date of publication of application : **20.04.1992**

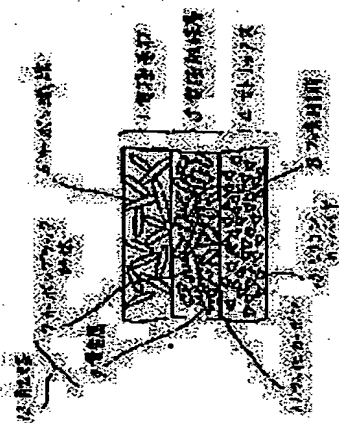
(51)Int.Cl.

**H01M 4/86**(21)Application number : **02-239304**(71)Applicant : **FUJI ELECTRIC CO LTD**(22)Date of filing : **10.09.1990**(72)Inventor : **SUGIYAMA TOSHIHIRO****(54) PHOSPHORIC ACID TYPE FUEL CELL**

(57)Abstract:

**PURPOSE:** To improve the performance and the reliability of a fuel cell by composing an electrode catalyst layer by using different materials to a binder and a water carrier member respectively.

**CONSTITUTION:** An electrode catalyst layer 5 is composed by combining a catalyst 13 in which a precious metal 9 is carried in a catalyst support being a carbon black power 7, and a carbon fluoride 11, with a fluorinated hydrocarbon resin 8. In such a gas diffusion electrodes of a fuel cell, a catalyst carrying platinum and a carbon fluoride powder are mixed to a carbon black powder. A fibrillated polytetrafluoroethylene powder to be the fluorinated hydrocarbon resin is added to this mixture, and stirred and mixed. In this mixing process, the powder is made into a fiber form. A solvent is added to this mixture to produce a dispersion solution of the catalyst, the carbon fluoride, and the fluorinated hydrocarbon resin, and solidified and separated by a centrifugal separator. The resultant slurry is contracted and molded, and then rolled to pressure-attach on a porous electrode basic material 1. And it is baked after drying to obtain an electrode for fuel cell.

**LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of

**BEST AVAILABLE COPY**

⑬ Int. Cl.<sup>3</sup>

H 01 M 4/86

識別記号

B

庁内整理番号

9062-4K

⑭ 公開 平成4年(1992)4月20日

審査請求 未請求 請求項の数 3 (全4頁)

⑮ 発明の名称 リン酸型燃料電池

⑯ 特 願 平2-239304

⑰ 出 願 平2(1990)9月10日

⑱ 発 明 者 杉 山 智 弘

神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号 富士電機株式会社内

⑲ 出 願 人 富士電機株式会社

神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号

⑳ 代 理 人 弁理士 山口 巖

# 明 細 書

1. 発明の名称 リン酸型燃料電池

2. 特許請求の範囲

1) 電極触媒層を有し、

電極触媒層は触媒と、結合材より高融点の撥水材とを結合材で溶融結着してなることを特徴とするリン酸型燃料電池。

2) 請求項1記載のリン酸型燃料電池において、結合材より高融点の撥水材はフッ化カーボンであることを特徴とするリン酸型燃料電池。

3) 請求項1記載のリン酸型燃料電池において、結合材は粉体状フィブリアル化性ポリテトラフロロエチレンであることを特徴とするリン酸型燃料電池。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

この発明はリン酸型燃料電池の電極触媒層に係り、特に電極触媒層の材料構成に関する。

(従来の技術)

第3図は従来のガス拡散電極12をマトリックス4とともに示す要部配置図である。電極基材1は

カーボン繊維6からなり、カーボン繊維6の間隙を反応ガスが流れ、電極触媒層5に反応ガスが供給される。電極触媒層5は貴金属粒子9の担持される触媒担体であるカーボンブラック粉体7とこれら触媒13を溶融結着するフッ素樹脂8およびこれらの形成する空孔とから構成される。マトリックス4はシリコンカーバイド10からなり、シリコンカーバイド10の間隙に電解質であるリン酸が含まれる。リン酸は、電極触媒層5に所定量が供給される。電極触媒層5の内部には電極基材1からの反応ガスと、マトリックス4からの電解質と、貴金属粒子の担持された触媒担体とにより3相界面が形成され電気化学反応が進行する。

上述の燃料電池のガス拡散電極12は触媒13を水に分散したあと、触媒と同量のポリテトラフロロエチレンディスパーションを加えて凝集させ、次いで電極基材上に成膜させ、乾燥後焼成して製作していた。

このような燃料電池の電極触媒層5においては時間とともに電解液が電極触媒層内をぬらしてゆ

き電極触媒層内の空孔が電解液で塞がれるという現象がおこる。このために反応ガスが電極触媒層内を拡散しにくくなり、燃料電池の特性が劣化する。

リン酸による電極触媒層空孔の閉塞を防ぐために、従来は第3図に示されるフッ素樹脂8の量を増大させフッ素樹脂に結合材としてのみならず、鉛水材としても機能させて、反応ガスの拡散性の低下を防止することが行われた。

(発明が解決しようとする課題)

しかしながら上述のようにフッ素樹脂に結合材と鉛水材の2つの機能を持たせる従来の燃料電池電極触媒層においては、ガス拡散性は確保されるもののカーボンブラック粉体7と貴金属9からなる触媒の表面を多量のフッ素樹脂が溶融結着により皮膜状に覆うため、触媒表面に反応ガスが供給されなくなったり、触媒がリン酸にぬれにくくなり、そのために触媒の利用率が減って特性が低下するという問題があった。

またこの際フッ素樹脂を溶融させないで電極を

貴金属を担持したものが用いられる。結合材は触媒と鉛水材とを結着するに必要な量が用いられる。

(作用)

結合材は結着に必要な量が用いられるので溶融結着に際し、触媒の表面が結合材により皮膜状に覆われることがなくなる。また鉛水材は結合材より高融点であるから、結合材による溶融結着に際し、鉛水材は溶融せず、触媒表面が鉛水材により被覆されることがない。鉛水材は電極触媒層の空孔が電解質で閉塞されることを防止する。

(実施例)

次にこの発明の実施例を図面に基いて説明する。第1図はこの発明の実施例に係るリン酸型燃料電池を示す模式断面図である。電極触媒層5はカーボンブラック粉体7である触媒担体に貴金属9を担持した触媒と、フッ化カーボン11とをフッ素樹脂8で結着して構成される。フッ素樹脂8は触媒とフッ化カーボンを結着するが、触媒表面を被覆することはない。フッ化カーボン11は鉛水性の材料であり、マトリックス4からの電解質が電極触

製作すると、特性は良好であるが、フッ素樹脂にその原料であるフッ素樹脂ディスパージョンに由来する界面活性剤が残存し、鉛水性の効果をあげることができないという問題があった。

この発明は上述の点に鑑みてなされ、その目的は結合材と鉛水材にそれぞれ異なる材料を用いて電極触媒層を構成することにより、特性と信頼性に優れるリン酸型燃料電池を提供することにある。

(課題を解決するための手段)

上述の目的はこの発明によれば、

1) 電極触媒層を有し、

電極触媒層は触媒と、結合材より高融点の鉛水材とを結合材で溶融結着してなること、

2) 請求項1記載のリン酸型燃料電池において、結合材より高融点の鉛水材はフッ化カーボンであること、または

3) 請求項1記載のリン酸型燃料電池において、結合材は粉体状フィブリル化性ポリテトラフロロエチレンであることにより達成される。

触媒はカーボンブラック粉体である触媒担体に

触媒層5の空孔を閉塞するのを防止する。フッ化カーボン11は結合材であるフッ素樹脂の溶融温度(350℃)で溶融することがなく触媒表面を被覆することがない。

このような燃料電池のガス拡散電極12は次のようにして調製される。カーボンブラック粉体に白金を10重量%担持した触媒100gとフッ化カーボン粉体100gを混合する。この混合物にフッ素樹脂であるフィブリル化性ポリテトラフロロエチレン粉体25gを加え、高速攪拌式粉体混合機により約10,000rpmの回転速度で攪拌混合する。この混合においてフィブリル化性ポリテトラフロロエチレンが繊維状になる。この混合物にイソプロピルアルコールを1000ml加えて触媒とフッ化カーボンとフッ素樹脂の分散液を作る。遠心分離器で固液分離する。得られたスラリーを圧縮成型し、次いでロール圧延して多孔質の電極基材上に圧着する。乾燥後350℃で焼成して燃料電池用電極が得られる。なお上述の高速攪拌混合は、ポリテトラフロロエチレンと触媒と、フッ化カーボンとが結合して造

粒状態になるまで継続される。

第2図はこの発明の実施例に係るリン酸型燃料電池につきそのセル電圧の運転時間依存性21を従来の電池の特性22と対比して示す線図である。本発明の実施例に係る燃料電池はフッ化カーボンにより電極触媒層内のガス拡散性が良好な状態に維持されるため、セル電圧の経時変化はゆるやかである。これに対し従来の燃料電池は電極触媒層の空孔が電解質によって経時的に閉塞されるため、そのセル電圧の降下は急速である。

フッ化カーボンは粒子内部に多くの空孔を有し、親水性の他、空孔を介して良くガスを拡散させる。

粉体状フィブリアル化性ポリテトラフロロエチレンは、繊維化して良好な電極触媒層の膜を形成させる。親水性も良好である。

(発明の効果)

この発明によれば、

1) 電極触媒層を有し、

電極触媒層は触媒と、結合材より高融点の親水材とを結合材で溶融結着してなること、

第3図は従来のリン酸型燃料電池を示す模式断面図である。

8: フッ素樹脂、11: フッ化カーボン、13: 触媒、5: 電極触媒層。

代理人 山 口 巖

2) 請求項1記載のリン酸型燃料電池において、結合材より高融点の親水材はフッ化カーボンであること、または

3) 請求項1記載のリン酸型燃料電池において、結合材は粉体状フィブリアル化性ポリテトラフロロエチレンであるとするので、

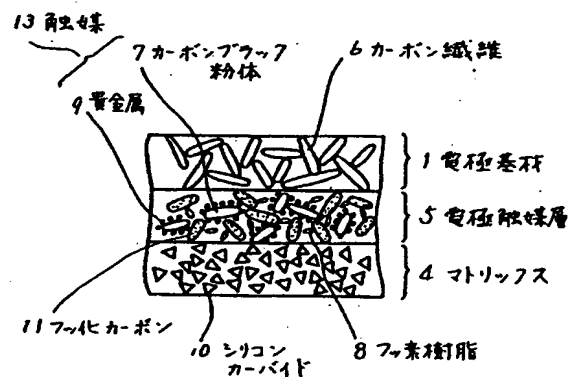
結合材は結着に必要とされる量を用いることができ、その結果触媒表面を結合材で被覆することなく電極触媒層の親水性を高めることができ、特性と信頼性に優れたリン酸型燃料電池が得られる。

フッ化カーボンは内部に空孔を有するので親水効果の他、ガス拡散性が良好になる。

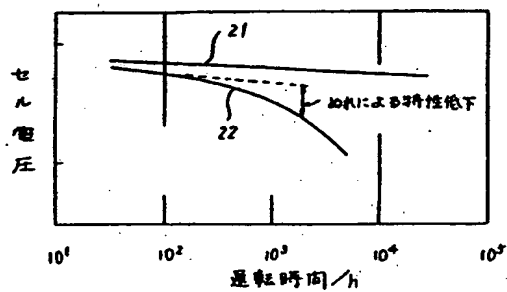
また粉体状フィブリアル化性ポリテトラフロロエチレンを用いて良好な電極触媒層の膜を形成することができ、かつ親水効果を高めることができる。

4. 図面の簡単な説明

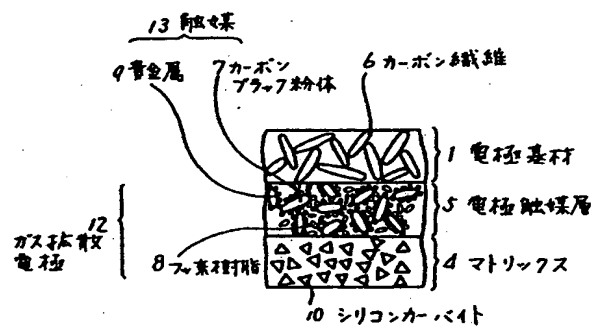
第1図はこの発明の実施例に係るリン酸型燃料電池を示す模式断面図、第2図はこの発明の実施例に係る燃料電池につき、セル電圧の運転時間依存性21を従来の電池の特性22と対比して示す線図、



第1図



第2図



第3図